

Katalysatorschüttungen mit an den äußeren Reibungsflächen abgerundeten katalytisch inaktiven Formkörpern

Beschreibung

5

Die vorliegende Erfindung betrifft neue Katalysatorschüttungen, enthaltend eine physikalische Mischung von katalytisch aktiven und katalytisch inaktiven Formkörpern, wobei die katalytisch inaktiven Formkörper an den äußeren Reibungsflächen abgerundete Kanten aufweisen.

10

Aus der EP-A-60 317 sind zylinderförmige Formkörper aus Graphit zur Verdünnung von Katalysatorbetten in Verfahren zur Oxichlorierung von Ethylen zu Ethylendichlorid bekannt.

15

Aus der US-A-5,202,511 sind Formkörper aus Aluminiumoxid, die ggf. mit einer Alkalikomponente getränkt sind, zur Verdünnung von Katalysatorbetten in Verfahren zur Oxichlorierung von Ethylen zu Ethylendichlorid bekannt.

20

Aus der EP-A-1 020 222 ist Kupfer in Form scharfkantiger Formkörper, wie einfacher Hohlzylinder oder Triloben, als Inertmaterial zur Verdünnung von Katalysatorbetten in exothermen Festbettverfahren bekannt.

25

Die hierbei eingesetzten Formkörper aus Graphit bzw. Aluminiumoxid haben den Nachteil, dass im Laufe der Synthese mechanischer Abrieb entsteht, der zu Druckverlusten führt.

30

Bei Katalysatorformkörpern, die deutlich geringere mechanische Stabilität als die Formkörper des Verdünnungsmaterials aufweisen, besteht insbesondere die Gefahr, dass die Katalysatorformkörper durch die katalytisch inerten Formkörper beschädigt werden, so dass es zu einem erhöhten Druckverlust entlang der Katalysatorschüttung und einem Verlust an katalytischer Aktivität kommt.

35

Der vorliegenden Erfindung lag daher die Aufgabe zugrunde, den zuvor genannten Nachteilen abzuweichen.

40

Demgemäß wurden neue Katalysatorschüttungen, enthaltend eine physikalische Mischung von katalytisch aktiven und katalytisch inaktiven Formkörpern, gefunden, welche dadurch gekennzeichnet sind, dass die katalytisch inaktiven Formkörper an den äußeren Reibungsflächen abgerundete Kanten aufweisen.

Die erfindungsgemäßen Katalysatorschüttungen können wie folgt hergestellt werden:

- 5 An den Reibungsflächen abgerundete katalytisch inaktive Formkörper können mit katalytisch aktiven Formkörpern, die bevorzugt an den Reibungsflächen abgerundet sind, als physikalische Mischungen in Katalysatorschüttungen eingesetzt werden.

Physikalische Mischungen sind mechanisch innig vermischte katalytisch aktive und katalytisch inaktive Formkörper.

- 10 Die an den Reibungsflächen abgerundeten katalytisch aktiven bzw. inaktiven Formkörper können in geeigneten Verformungs- oder Presswerkzeugen, bevorzugt Tablettenpressen, hergestellt werden.

- 15 Das Mischungsverhältnis von katalytisch aktiven Formkörpern zu katalytisch inaktiven Formkörpern kann in weiten Grenzen variiert werden und liegt in der Regel im Gewichtsverhältnis von 0,001:1 bis 10000:1, bevorzugt 0,1:1 bis 100:1, besonders bevorzugt 0,5:1 bis 10:1, insbesondere 0,8:1 bis 3:1.

- 20 Zwar besitzen Kugeln ebenfalls keine scharfen Kanten, zeigen dafür jedoch in der Regel einen zu hohen Druckverlust.

- 25 Formkörper im Sinne der Erfindung sind alle bekannten Formkörper mit Ausnahme von Kugeln. Als Formkörper eignen sich beispielsweise Vollzylinder, Doughnuts, Sättel, Triloben oder Ringtabletten, bevorzugt Vollzylinder oder Ringtabletten, besonders bevorzugt Ringtabletten.

- 30 Die katalytisch aktiven bzw. inaktiven Formkörper können Kanten, auch scharfe Kanten, aufweisen, die sich nicht auf den Reibungsflächen befinden, also in das Innere des jeweiligen Formkörpers gerichtet sind. Beispielsweise können erfindungsgemäß geformte Ringtabletten zum äußeren Rand hin abgerundete Flächen, z.B. Stirnflächen, zum Rand der Innenbohrung hin jedoch scharfe Kanten aufweisen. Bevorzugt werden jedoch Formkörper, die nur abgerundete Kanten (also keinerlei scharfe Kanten) aufweisen.

- 35 Die katalytisch aktiven bzw. inaktiven Formkörper können gleiche, ähnliche oder verschiedene Geometrien haben. Auch Mischungen von verschiedenen Geometrien sowohl bei den katalytisch aktiven als auch bei den katalytisch inaktiven Formkörpern ist möglich, bevorzugt haben die katalytisch inaktiven Formkörper die gleiche oder eine ähnliche Geometrie wie die katalytisch aktiven Formkörper, besonders bevorzugt sind
40 Ringtabletten mit abgerundeten Stirnflächen. Ganz besonders bevorzugt werden Ring-

tablettten, bei denen die Stirnflächen sowohl zum äußeren Rand als auch zum Rand der Innenbohrung hin abgerundet sind. Auch Ringtabletten mit einer sogenannten doughnut-artigen Form sind geeignet.

- 5 Solche Ringtabletten mit abgerundeten Stirnflächen oder in „doughnut“-Form sind als Katalysatoren oder Katalysatorträger bekannt (EP-A-184 790, EP-A-1 052 018, US-B-6,518,220).

- 10 Die erfindungsgemäß eingesetzten katalytisch inaktiven Formkörper und katalytisch aktiven Formkörper weisen vorteilhafterweise Geometrien, wie sie in US-B-6,518,220 (DE-A-100 09 017) beschrieben sind, auf. Solche Formkörper, vorzugsweise Hohlzylinder oder Ringtabletten, besitzen beispielsweise einen Radius der Krümmung der Stirnflächen, der das 0,01 bis 0,5fache, bevorzugt das 0,05 bis 0,4fache, besonders bevorzugt das 0,1 bis 0,2fache des Außendurchmessers ist. Die Hohlzylinder oder
- 15 Ringtabletten weisen dabei üblicherweise Außendurchmesser von 3 bis 20 mm, bevorzugt 3 bis 10 mm, besonders bevorzugt 3 bis 7 mm, insbesondere 3,5 bis 6,5 mm, und einen Innendurchmesser, der das 0,1 bis 0,7fache des Außendurchmessers beträgt, und eine Länge, die das 0,2 bis 2fache, bevorzugt das 0,3 bis 1,8fache, besonders bevorzugt das 0,4 bis 1,6fache des Außendurchmessers beträgt, auf.

- 20 Eine Kante beginnt im Sinne unserer Erfindung bei einem innenliegenden Winkel von kleiner oder gleich 90 Grad. Die erfindungsgemäßen Formkörper weisen vorzugsweise einen innenliegenden Winkel von größer als 90 Grad, insbesondere von größer als 100 Grad auf.

- 25 Katalytisch inaktive Formkörper sind solche Formkörper, deren katalytische Aktivität 0 bis 15 %, bevorzugt 0 bis 10 %, besonders bevorzugt 0 bis 5 %, insbesondere 0 bis 2 %, der katalytischen Aktivität der katalytisch aktiven Formkörper beträgt.

- 30 Insbesondere sollten die katalytisch inaktiven auch möglichst inaktiv hinsichtlich der Katalyse etwaiger Nebenreaktionen sein, so dass die Gesamtselektivität des Verfahrens optimiert ist.

- 35 Als Materialien für katalytisch inaktive Formkörper eignen sich (je nach den Rahmenbedingungen des Verfahrens) beispielsweise Graphit, Aluminiumoxid, Steatit, Siliciumoxid oder Glas, bevorzugt Aluminiumoxid oder Steatit. Als Aluminiumoxide werden insbesondere γ -, δ -, θ oder α -Aluminiumoxid oder Mischungen dieser Aluminiumoxide verwendet. Bevorzugt werden Materialien mit geringer BET-Oberfläche von 0,01 bis 200 m²/g, bevorzugt 0,1 bis 150 m²/g, besonders bevorzugt 0,2 bis 120 m²/g. Solche
- 40 Materialien können beispielsweise durch eine Calcinierung erhalten werden. Dem

Material können auch Zusätze zur weiteren Inertisierung zugesetzt werden. Beispielsweise können die Formkörper mit wässrigen Alkaliverbindungen, wie NaCl, KCl, bevorzugt wässrigen Alkaliverbindungen mit flüchtigem Anion, wie Lithiumcarbonat, Lithiumhydrogencarbonat, Natriumcarbonat, Natriumhydrogencarbonat, Kaliumcarbonat, Kaliumhydrogencarbonat, getränkt und anschließend bei Temperaturen von 100 bis 1200°C, bevorzugt 120 bis 1000°C, besonders bevorzugt 150 bis 700°C, getrocknet werden.

Die katalytisch inaktiven Formkörper können in beliebigen heterogen-katalysierten Festbettverfahren eingesetzt werden, bevorzugt in exothermen Gasphasenverfahren, insbesondere bei Verfahren zur Oxichlorierung von Ethylen zu Ethylendichlorid, bei der Oxidation von Chlorwasserstoff zu Chlor (Deacon-Prozess), bei der Oxidation von Methanol zu Formaldehyd (Formox®-Prozess), bei der Oxidation von o-Xylol oder Naphthlin zu Phthalsäureanhydrid, bei der Oxidation von Ethen zu Ethylenoxid, bei der Oxidation von Butan, Butenen, Butadien oder Benzol zu Maleinsäureanhydrid oder bei der Oxidation von Propan oder Propen zu Acrolein oder Acrylsäure.

Als katalytisch aktive Massen zur Oxichlorierung von Ethylen zu Ethylendichlorid eignen sich alle hierfür bekannten katalytisch aktiven Massen, beispielsweise Kupferchlorid auf Al_2O_3 -Trägern, sowie solche, die aus WO-A-99/48606 bekannt sind.

Als katalytisch aktive Massen zur Oxidation von Chlorwasserstoff zu Chlor (Deacon-Prozess) eignen sich alle hierfür bekannten katalytisch aktiven Massen, beispielsweise Kupferchlorid, Chromoxid, Rutheniumverbindungen, sowie solche, die aus EP-A-743 277 bekannt sind.

Als katalytisch aktive Massen zur Oxidation von Methanol zu Formaldehyd (Formox®-Prozess) eignen sich alle hierfür bekannten katalytisch aktiven Massen, beispielsweise Eisenmolybdate, sowie solche, die aus US 3,716,495 bekannt sind.

Als katalytisch aktive Massen zur Oxidation von o-Xylol oder Naphthalin zu Phthalsäureanhydrid eignen sich alle hierfür bekannten katalytisch aktiven Massen, beispielsweise Vanadiumpentoxid oder Vanadium/Titan-Oxide, z.B. solche, die aus DE-A-2 510 994 oder WO-A-00/12214 bekannt sind.

Als katalytisch aktive Massen zur Oxidation von Ethen zu Ethylenoxid eignen sich hierfür bekannte katalytisch aktive Massen, beispielsweise bekannte Edelmetallkatalysatoren, z.B. solche, die aus DE 4 314 304, EP 0 557 833, EP 0 266 015 bekannt sind.

Als katalytisch aktive Massen zur Oxidation von Butan, Butenen, Butadien oder Benzol zu Maleinsäureanhydrid eignen sich alle hierfür bekannten katalytisch aktiven Massen, beispielsweise Phosphor/Vanadium-Mischoxide, z.B. solche, die aus US 3,293,268 bekannt sind.

5

Als katalytisch aktive Massen zur Oxidation von Propan oder Propen zu Acrolein oder Acrylsäure eignen sich alle hierfür bekannten katalytisch aktiven Massen, beispielsweise Multimetalloxidmassen, z.B. solche, die aus EP-A-608 838, US 3,475,488 oder EP-A-575 897 bekannt sind.

Patentansprüche

1. Katalysatorschüttung enthaltend eine physikalische Mischung von katalytisch aktiven und katalytisch inaktiven Formkörpern, dadurch gekennzeichnet, dass die katalytisch inaktiven Formkörper an den äußeren Reibungsflächen abgerundete Kanten aufweisen.
2. Katalysatorschüttung enthaltend eine physikalische Mischung von katalytisch aktiven und katalytisch inaktiven Formkörpern nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, dass die katalytisch aktiven Formkörper an den äußeren Reibungsflächen abgerundete Kanten aufweisen.
3. Verfahren zur Herstellung von Katalysatorschüttungen aus katalytisch aktiven und katalytisch inaktiven Formkörpern, dadurch gekennzeichnet, dass katalytisch inaktive Formkörper eingesetzt werden, die an den äußeren Reibungsflächen abgerundete Kanten aufweisen.
4. Verwendung der Katalysatorschüttungen nach Anspruch 3 in heterogen-katalysierten Festbettverfahren.
5. Verwendung der Katalysatorschüttungen nach Anspruch 3 in exothermen Gasphasenverfahren.
6. Verwendung der Katalysatorschüttungen nach Anspruch 3 bei Verfahren zur Oxichlorierung von Ethylen zu Ethylendichlorid, bei der Oxidation von Chlorwasserstoff zu Chlor (Deacon-Prozess), bei der Oxidation von Methanol zu Formaldehyd (Formox®-Prozess), bei der Oxidation von o-Xylol oder Naphthalin zu Phthalsäureanhydrid, der Oxidation von Ethen zu Ethylenoxid, der Oxidation von Butan, Butenen, Butadien oder Benzol zu Maleinsäureanhydrid oder der Oxidation von Propan oder Propen zu Acrolein oder Acrylsäure.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International Application No.
PCT/EP2004/011258

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER IPC 7 B01J19/30		
According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC		
B. FIELDS SEARCHED Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols) IPC 7 B01J		
Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched		
Electronic data base consulted during the International search (name of data base and, where practical, search terms used) EPO-Internal, WPI Data, PAJ		
C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT		
Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X	WO 03/074457 A (GEN ELECTRIC) 12 September 2003 (2003-09-12)	1-5
Y	abstract page 6, paragraph 1 - paragraph 3; figure 1 page 7, paragraph 3 page 8, paragraph 1 page 8, paragraph 4 - page 9, paragraph 1	6
X	WO 99/40236 A (STAUFFER JOHN E) 12 August 1999 (1999-08-12)	1-5
Y	abstract; figure 1 page 4, line 1 - line 8 ----- -/--	6
<div style="display: flex; justify-content: space-between;"> <input checked="" type="checkbox"/> Further documents are listed in the continuation of box C. <input checked="" type="checkbox"/> Patent family members are listed in annex. </div>		
<div style="display: flex;"> <div style="flex: 1;"> <p>* Special categories of cited documents:</p> <p>*A* document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance</p> <p>*E* earlier document but published on or after the international filing date</p> <p>*L* document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)</p> <p>*O* document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means</p> <p>*P* document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed</p> </div> <div style="flex: 1;"> <p>*T* later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention</p> <p>*X* document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone</p> <p>*Y* document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art.</p> <p>*Z* document member of the same patent family</p> </div> </div>		
Date of the actual completion of the international search	Date of mailing of the international search report	
8 December 2004	16/12/2004	
Name and mailing address of the ISA European Patent Office, P.B. 5818 Patentlaan 2 NL - 2280 HV Rijswijk Tel. (+31-70) 340-2040, Tx. 31 651 epo nl, Fax: (+31-70) 340-3016	Authorized officer Thomasson, P	

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International Application No
PCT/EP2004/011258

C.(Continuation) DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT		
Category *	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
Y	EP 1 127 618 A (BASF AG) 29 August 2001 (2001-08-29) abstract page 2, paragraph 4 - paragraph 6 page 2, paragraph 13 page 3, paragraph 22 -----	1-6
Y	EP 0 095 851 A (MOBIL OIL CORP) 7 December 1983 (1983-12-07) abstract page 1, paragraph 1 - paragraph 2 page 2, paragraph 1 - paragraph 2 page 3, paragraph 1 page 5, paragraph 2 -----	1-6
A	US 3 151 187 A (JEAN COMTE) 29 September 1964 (1964-09-29) column 2, line 58 - line 61; figure 3e -----	1

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

Information on patent family members

International Application No

PCT/EP2004/011258

Patent document cited in search report		Publication date	Patent family member(s)	Publication date
WO 03074457	A	12-09-2003	US 2003166976 A1 EP 1480933 A1 WO 03074457 A1 US 2004136887 A1	04-09-2003 01-12-2004 12-09-2003 15-07-2004
WO 9940236	A	12-08-1999	US 6010604 A AU 2473299 A EP 1051540 A1 WO 9940236 A1	04-01-2000 23-08-1999 15-11-2000 12-08-1999
EP 1127618	A	29-08-2001	DE 10009017 A1 CN 1317369 A EP 1127618 A1 JP 2001293376 A US 2001029235 A1	06-09-2001 17-10-2001 29-08-2001 23-10-2001 11-10-2001
EP 0095851	A	07-12-1983	US 4441990 A DE 3368533 D1 EP 0095851 A1 JP 1887840 C JP 4020665 B JP 58214346 A	10-04-1984 05-02-1987 07-12-1983 22-11-1994 06-04-1992 13-12-1983
US 3151187	A	29-09-1964	NONE	

INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT

Internationales Aktenzeichen

PCT/EP2004/011258

A. KLASSIFIZIERUNG DES ANMELDUNGSGEGENSTANDES
IPK 7 801J19/30

Nach der Internationalen Patentklassifikation (IPK) oder nach der nationalen Klassifikation und der IPK

B. RECHERCHIERTE GEBIETE

Recherchierte Mindestprüfstoff (Klassifikationssystem und Klassifikationssymbole)

IPK 7 801J

Recherchierte aber nicht zum Mindestprüfstoff gehörende Veröffentlichungen, soweit diese unter die recherchierten Gebiete fallen

Während der internationalen Recherche konsultierte elektronische Datenbank (Name der Datenbank und evtl. verwendete Suchbegriffe)

EPO-Internal, WPI Data, PAJ

C. ALS WESENTLICH ANGESEHENE UNTERLAGEN

Kategorie*	Bezeichnung der Veröffentlichung, soweit erforderlich unter Angabe der in Betracht kommenden Teile	Betr. Anspruch Nr.
X	WO 03/074457 A (GEN ELECTRIC) 12. September 2003 (2003-09-12)	1-5
Y	Zusammenfassung Seite 6, Absatz 1 - Absatz 3; Abbildung 1 Seite 7, Absatz 3 Seite 8, Absatz 1 Seite 8, Absatz 4 - Seite 9, Absatz 1	6
X	WO 99/40236 A (STAUFFER JOHN E) 12. August 1999 (1999-08-12)	1-5
Y	Zusammenfassung; Abbildung 1 Seite 4, Zeile 1 - Zeile 8	6
	----- -/--	

☒ Weitere Veröffentlichungen sind der Fortsetzung von Feld C zu entnehmen

☒ Siehe Anhang Patentfamilie

* Besondere Kategorien von angegebenen Veröffentlichungen :

A Veröffentlichung, die den allgemeinen Stand der Technik definiert, aber nicht als besonders bedeutsam anzusehen ist

E älteres Dokument, das jedoch erst am oder nach dem internationalen Anmeldedatum veröffentlicht worden ist

L Veröffentlichung, die geeignet ist, einen Prioritätsanspruch zweifelhaft erscheinen zu lassen, oder durch die das Veröffentlichungsdatum einer anderen im Recherchenbericht genannten Veröffentlichung belegt werden soll oder die aus einem anderen besonderen Grund angegeben ist (wie ausgeführt)

O Veröffentlichung, die sich auf eine mündliche Offenbarung, eine Benutzung, eine Ausstellung oder andere Maßnahmen bezieht

P Veröffentlichung, die vor dem internationalen Anmeldedatum, aber nach dem beanspruchten Prioritätsdatum veröffentlicht worden ist

T Spätere Veröffentlichung, die nach dem internationalen Anmeldedatum oder dem Prioritätsdatum veröffentlicht worden ist und mit der Anmeldung nicht kollidiert, sondern nur zum Verständnis des der Erfindung zugrundeliegenden Prinzips oder der ihr zugrundeliegenden Theorie angegeben ist

X Veröffentlichung von besonderer Bedeutung; die beanspruchte Erfindung kann allein aufgrund dieser Veröffentlichung nicht als neu oder auf erfinderischer Tätigkeit beruhend betrachtet werden

Y Veröffentlichung von besonderer Bedeutung; die beanspruchte Erfindung kann nicht als auf erfinderischer Tätigkeit beruhend betrachtet werden, wenn die Veröffentlichung mit einer oder mehreren anderen Veröffentlichungen dieser Kategorie in Verbindung gebracht wird und diese Verbindung für einen Fachmann naheliegend ist

Z Veröffentlichung, die Mitglied derselben Patentfamilie ist

Datum des Abschlusses der internationalen Recherche

8. Dezember 2004

Absenddatum des internationalen Recherchenberichts

16/12/2004

Name und Postanschrift der Internationalen Recherchenbehörde
Europäisches Patentamt, P.B. 5818 Patentlaan 2
NL - 2280 HV Rijswijk
Tel. (+31-70) 340-2040, Tx. 31 651 epo nl,
Fax: (+31-70) 340-3016

Bevollmächtigter Bediensteter

Thomasson, P

INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT

Internationales Aktenzeichen

PCT/EP2004/011258

C.(Fortsetzung) ALS WESENTLICH ANGESEHENE UNTERLAGEN		
Kategorie*	Bezeichnung der Veröffentlichung, soweit erforderlich unter Angabe der in Betracht kommenden Teile	Betr. Anspruch Nr.
Y-	EP 1 127 618 A (BASF AG) 29. August 2001 (2001-08-29) Zusammenfassung Seite 2, Absatz 4 - Absatz 6 Seite 2, Absatz 13 Seite 3, Absatz 22	1-6
Y	EP 0 095 851 A (MOBIL OIL CORP) 7. Dezember 1983 (1983-12-07) Zusammenfassung Seite 1, Absatz 1 - Absatz 2 Seite 2, Absatz 1 - Absatz 2 Seite 3, Absatz 1 Seite 5, Absatz 2	1-6
A	US 3 151 187 A (JEAN COMTE) 29. September 1964 (1964-09-29) Spalte 2, Zeile 58 - Zeile 61; Abbildung 3e	1

INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT

Angaben zu Veröffentlichungen, die zur selben Patentfamilie gehören

Internationales Aktenzeichen

PCT/EP2004/011258

Im Recherchenbericht angeführtes Patentdokument		Datum der Veröffentlichung	Mitglied(er) der Patentfamilie		Datum der Veröffentlichung
WO 03074457	A	12-09-2003	US	2003166976 A1	04-09-2003
			EP	1480933 A1	01-12-2004
			WO	03074457 A1	12-09-2003
			US	2004136887 A1	15-07-2004
WO 9940236	A	12-08-1999	US	6010604 A	04-01-2000
			AU	2473299 A	23-08-1999
			EP	1051540 A1	15-11-2000
			WO	9940236 A1	12-08-1999
EP 1127618	A	29-08-2001	DE	10009017 A1	06-09-2001
			CN	1317369 A	17-10-2001
			EP	1127618 A1	29-08-2001
			JP	2001293376 A	23-10-2001
			US	2001029235 A1	11-10-2001
EP 0095851	A	07-12-1983	US	4441990 A	10-04-1984
			DE	3368533 D1	05-02-1987
			EP	0095851 A1	07-12-1983
			JP	1887840 C	22-11-1994
			JP	4020665 B	06-04-1992
			JP	58214346 A	13-12-1983
US 3151187	A	29-09-1964	KEINE		

VERTRAG ÜBER DIE INTERNATIONALE ZUSAMMENARBEIT AUF DEM GEBIET DES PATENTWESENS

REC'D 05 DEC 2005


PCT

WIPO

PCT

INTERNATIONALER VORLÄUFIGER BERICHT ÜBER DIE PATENTIERBARKEIT

(Kapitel II des Vertrags über die internationale Zusammenarbeit auf dem Gebiet des Patentwesens)

Aktenzeichen des Anmelders oder Anwalts 0000054963	WEITERES VORGEHEN siehe Formblatt PCT/PEA/416	
Internationales Aktenzeichen PCT/EP2004/011258	Internationales Anmeldedatum (Tag/Monat/Jahr) 08.10.2004	Prioritätsdatum (Tag/Monat/Jahr) 15.10.2003
Internationale Patentklassifikation (IPK) oder nationale Klassifikation und IPK B01J19/30		
Anmelder BASF AKTIENGESELLSCHAFT et al.		
<p>1. Bei diesem Bericht handelt es sich um den internationalen vorläufigen Prüfungsbericht, der von der mit der internationalen vorläufigen Prüfung beauftragten Behörde nach Artikel 35 erstellt wurde und dem Anmelder gemäß Artikel 36 übermittelt wird.</p> <p>2. Dieser BERICHT umfaßt insgesamt 5 Blätter einschließlich dieses Deckblatts.</p> <p>3. Außerdem liegen dem Bericht ANLAGEN bei; diese umfassen</p> <p>a. <input checked="" type="checkbox"/> (an den Anmelder und das Internationale Büro gesandt) insgesamt 1 Blätter; dabei handelt es sich um</p> <p><input checked="" type="checkbox"/> Blätter mit der Beschreibung, Ansprüchen und/oder Zeichnungen, die geändert wurden und diesem Bericht zugrunde liegen, und/oder Blätter mit Berichtigungen, denen die Behörde zugestimmt hat (siehe Regel 70.16 und Abschnitt 607 der Verwaltungsvorschriften).</p> <p><input type="checkbox"/> Blätter, die frühere Blätter ersetzen, die aber aus den in Feld Nr. 1, Punkt 4 und im Zusatzfeld angegebenen Gründen nach Auffassung der Behörde eine Änderung enthalten, die über den Offenbarungsgehalt der internationalen Anmeldung in der ursprünglich eingereichten Fassung hinausgeht.</p> <p>b. <input type="checkbox"/> (nur an das Internationale Büro gesandt) insgesamt (bitte Art und Anzahl der/des elektronischen Datenträger(s) angeben), der/die ein Sequenzprotokoll und/oder die dazugehörigen Tabellen enthält/enthalten, nur in computerlesbarer Form, wie im Zusatzfeld betreffend das Sequenzprotokoll angegeben (siehe Abschnitt 802 der Verwaltungsvorschriften).</p>		
<p>4. Dieser Bericht enthält Angaben zu folgenden Punkten:</p> <p><input checked="" type="checkbox"/> Feld Nr. I Grundlage des Bescheids</p> <p><input type="checkbox"/> Feld Nr. II Priorität</p> <p><input type="checkbox"/> Feld Nr. III Keine Erstellung eines Gutachtens über Neuheit, erfinderische Tätigkeit und gewerbliche Anwendbarkeit</p> <p><input type="checkbox"/> Feld Nr. IV Mangelnde Einheitlichkeit der Erfindung</p> <p><input checked="" type="checkbox"/> Feld Nr. V Begründete Feststellung nach Artikel 35(2) hinsichtlich der Neuheit, der erfinderischen Tätigkeit und der gewerblichen Anwendbarkeit; Unterlagen und Erklärungen zur Stützung dieser Feststellung</p> <p><input type="checkbox"/> Feld Nr. VI Bestimmte angeführte Unterlagen</p> <p><input type="checkbox"/> Feld Nr. VII Bestimmte Mängel der internationalen Anmeldung</p> <p><input checked="" type="checkbox"/> Feld Nr. VIII Bestimmte Bemerkungen zur internationalen Anmeldung</p>		
Datum der Einreichung des Antrags 09.08.2005	Datum der Fertigstellung dieses Berichts 01.12.2005	
Name und Postanschrift der mit der internationalen Prüfung beauftragten Behörde  Europäisches Patentamt D-80298 München Tel. +49 89 2399 - 0 Tx: 523656 epmu d Fax: +49 89 2399 - 4465	Bevollmächtigter Bediensteter Thomasson, P Tel. +49 89 2399-8339	



Feld Nr. I Grundlage des Berichts

1. Hinsichtlich der **Sprache** beruht der Bericht auf der internationalen Anmeldung in der Sprache, in der sie eingereicht wurde, sofern unter diesem Punkt nichts anderes angegeben ist.
- ☐ Der Bericht beruht auf einer Übersetzung aus der Originalsprache in die folgende Sprache, bei der es sich um die Sprache der Übersetzung handelt, die für folgenden Zweck eingereicht worden ist:
- ☐ internationale Recherche (nach Regeln 12.3 und 23.1 b))
 - ☐ Veröffentlichung der internationalen Anmeldung (nach Regel 12.4)
 - ☐ internationale vorläufige Prüfung (nach Regeln 55.2 und/oder 55.3)
2. Hinsichtlich der **Bestandteile*** der internationalen Anmeldung beruht der Bericht auf (*Ersatzblätter, die dem Anmeldeamt auf eine Aufforderung nach Artikel 14 hin vorgelegt wurden, gelten im Rahmen dieses Berichts als "ursprünglich eingereicht" und sind ihm nicht beigelegt*):

Beschreibung, Seiten

1-5 in der ursprünglich eingereichten Fassung

Ansprüche, Nr.

1-6 eingegangen am 09.08.2005 mit Schreiben vom 05.08.2005

☐ einem Sequenzprotokoll und/oder etwaigen dazugehörigen Tabellen - siehe Zusatzfeld betreffend das Sequenzprotokoll

3. ☐ Aufgrund der Änderungen sind folgende Unterlagen fortgefallen:
- ☐ Beschreibung: Seite
 - ☐ Ansprüche: Nr.
 - ☐ Zeichnungen: Blatt/Abb.
 - ☐ Sequenzprotokoll (*genaue Angaben*):
 - ☐ etwaige zum Sequenzprotokoll gehörende Tabellen (*genaue Angaben*):
4. ☐ Dieser Bericht ist ohne Berücksichtigung (von einigen) der diesem Bericht beigelegten und nachstehend aufgelisteten Änderungen erstellt worden, da diese aus den im Zusatzfeld angegebenen Gründen nach Auffassung der Behörde über den Offenbarungsgehalt in der ursprünglich eingereichten Fassung hinausgehen (Regel 70.2 c)).
- ☐ Beschreibung: Seite
 - ☐ Ansprüche: Nr.
 - ☐ Zeichnungen: Blatt/Abb.
 - ☐ Sequenzprotokoll (*genaue Angaben*):
 - ☐ etwaige zum Sequenzprotokoll gehörende Tabellen (*genaue Angaben*):

* Wenn Punkt 4 zutrifft, können einige oder alle dieser Blätter mit der Bemerkung "ersetzt" versehen werden.

**INTERNATIONALER VORLÄUFIGER BERICHT
ÜBER DIE PATENTIERBARKEIT**

Internationales Aktenzeichen
PCT/EP2004/011258

Feld Nr. V Begründete Feststellung nach Artikel 35 (2) hinsichtlich der Neuheit, der erfinderischen Tätigkeit und der gewerblichen Anwendbarkeit; Unterlagen und Erklärungen zur Stützung dieser Feststellung

1. Feststellung
- | | |
|--------------------------------|--------------------|
| Neuheit (N) | Ja: Ansprüche 1-6 |
| | Nein: Ansprüche |
| Erfinderische Tätigkeit (IS) | Ja: Ansprüche 1-6 |
| | Nein: Ansprüche |
| Gewerbliche Anwendbarkeit (IA) | Ja: Ansprüche: 1-6 |
| | Nein: Ansprüche: |

2. Unterlagen und Erklärungen (Regel 70.7):

siehe Beiblatt

Feld Nr. VIII Bestimmte Bemerkungen zur internationalen Anmeldung

Zur Klarheit der Patentansprüche, der Beschreibung und der Zeichnungen oder zu der Frage, ob die Ansprüche in vollem Umfang durch die Beschreibung gestützt werden, ist folgendes zu bemerken:

siehe Beiblatt

Zu Punkt V

Begründete Feststellung hinsichtlich der Neuheit, der erfinderischen Tätigkeit und der gewerblichen Anwendbarkeit; Unterlagen und Erklärungen zur Stützung dieser Feststellung

1. Es wird auf die folgenden Dokumente verwiesen:

D1: WO03/074457

D2: WO99/40236

D3: EP-A-1 127 618

D4: EP-A-0 095 851

D5: US-A-3 151 187

2. Die Anmeldung **erfüllt** die Erfordernisse des Artikels 33(2)-(3) PCT aus folgenden Gründen:

2.1 Nächstliegender Stand der Technik.

D1 offenbart Katalysatorschüttungen mit einer Mischung von katalytisch aktiven Formkörpern (Kugeln) und katalytisch inerten Formkörpern mit abgerundeten Kanten (Sättel; siehe D1: Internationaler Recherchenbericht). Insbesondere werden in D1 Berl Sättel erwähnt, die bekanntlich **abgerundete Kanten** besitzen (siehe z. B. D5: Abbildung 3e).

2.2 Neuheit.

Der Gegenstand des Anspruchs 1 unterscheidet sich von D1 dadurch, daß die inaktiven Formkörper **Hohlzylinder** oder **Ringtabletten** sind, die an den äußeren Reibungsflächen abgerundete Kanten aufweisen, wobei der Krümmungsradius der Stirnflächen 0,01 bis 0,5fache des Außendurchmessers ist.

2.3 Erfinderische Tätigkeit.

Die zu lösende technische Aufgabe gegenüber D1 besteht darin, die Entstehung von

mechanischem Abrieb innerhalb des katalytischen Bettes zu vermeiden und gleichzeitig den **Druckverlust** innerhalb des katalytischen Bettes niedrig zu halten. Es ist annehmbar, daß Katalysatorschüttungen mit **Hohlzylindern** oder **Ringtabletten** gemäß Anspruch 1 zur Lösung der oben genannten Aufgabe führen (siehe Seite 3, Zeilen 9-19). Das Problem des mechanischen Abrieb wird in D1 nicht angesprochen. D1 gibt keine Hinweise, daß die Formkörper gemäß Anspruch 1 zur Lösung der technischen Aufgabe führen können.

Dies gilt auch für D2-D4, die zwar **abgerundete** Formkörper, z. B. **Katalysatorträger** geformt als Sattel, Ringe... (siehe D2-D4: Internationaler Recherchenbericht) beschreiben, aber keine Hinweise liefern, um **Katalysatorschüttungen** von aktiven und inaktiven Formkörpern gemäß Anspruch 1 herzustellen. Dadurch kann der Gegenstand der Ansprüche 1-6 als erfinderisch betrachtet werden (Artikel 33(3) PCT).

Zu Punkt VIII

Bestimmte Bemerkungen zur internationalen Anmeldung

1. Aus der Beschreibung auf Seite 2, Zeilen 19-25 geht hervor, daß das folgende Merkmal, sowohl für die **aktiven** als auch für die inaktiven Formkörper, für die Definition der Erfindung **wesentlich** ist:

(1) Ausnahme von **Kugeln**.

Da die unabhängigen Ansprüche **1** und **3** dieses Merkmal **bei den aktiven Formkörpern** nicht enthalten, entsprechen diese Ansprüche nicht dem Erfordernis des Artikels 6 PCT in Verbindung mit Regel 6.3 b) PCT, daß jeder unabhängige Anspruch alle technischen Merkmale enthalten muß, die für die Definition der Erfindung wesentlich sind.

2. Die **Beschreibung** steht nicht, wie in Regel 5.1 a) iii) PCT vorgeschrieben, in Einklang mit den **geänderten Ansprüchen**.

Patentansprüche

1. Katalysatorschüttung enthaltend eine physikalische Mischung von katalytisch aktiven und katalytisch inaktiven Formkörpern, dadurch gekennzeichnet, dass die katalytisch inaktiven Formkörper Hohlzylinder oder Ringtabletten sind, die an den äußeren Reibungsflächen abgerundete Kanten aufweisen, wobei der Radius der Krümmung der Stirnflächen das 0,01 bis 0,5fache des Außendurchmessers ist.
2. Katalysatorschüttung enthaltend eine physikalische Mischung von katalytisch aktiven und katalytisch inaktiven Formkörpern nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, dass die katalytisch aktiven Formkörper an den äußeren Reibungsflächen abgerundete Kanten aufweisen.
3. Verfahren zur Herstellung von Katalysatorschüttungen aus katalytisch aktiven und katalytisch inaktiven Formkörpern, dadurch gekennzeichnet, dass als katalytisch inaktive Formkörper Hohlzylinder oder Ringtabletten eingesetzt werden, die an den äußeren Reibungsflächen abgerundete Kanten aufweisen, wobei der Radius der Krümmung der Stirnflächen das 0,01 bis 0,5fache des Außendurchmessers ist.
4. Verwendung der Katalysatorschüttungen nach Anspruch 3 in heterogen-katalysierten Festbettverfahren.
5. Verwendung der Katalysatorschüttungen nach Anspruch 3 in exothermen Gasphasenverfahren.
6. Verwendung der Katalysatorschüttungen nach Anspruch 3 bei Verfahren zur Oxichlorierung von Ethylen zu Ethylendichlorid, bei der Oxidation von Chlorwasserstoff zu Chlor (Deacon-Prozess), bei der Oxidation von Methanol zu Formaldehyd (Formox®-Prozess), bei der Oxidation von o-Xylol oder Naphthalin zu Phthalsäureanhydrid, der Oxidation von Ethen zu Ethylenoxid, der Oxidation von Butan, Butenen, Butadien oder Benzol zu Maleinsäureanhydrid oder der Oxidation von Propan oder Propen zu Acrolein oder Acrylsäure.